

[12]发明专利申请公开说明书

[21]申请号 98809896.2

[43]公开日 2000年11月15日

[11]公开号 CN 1273699A

[22]申请日 1998.10.13 [21]申请号 98809896.2

[30]优先权

[32]1997.10.14JP [33]JP [31]280252/1997
 [32]1997.10.21JP [33]JP [31]288927/1997
 [32]1997.10.21JP [33]JP [31]288928/1997
 [32]1997.11.11JP [33]JP [31]308180/1997

[86]国际申请 PCT/JP98/04607 1998.10.13

[87]国际公布 WO99/19927 日 1999.4.22

[85]进入国家阶段日期 2000.4.6

[71]申请人 日新制钢株式会社

地址 日本国东京都

共同申请人 丰田自动车株式会社

[72]发明人 福居康 松野雅典 斋藤实

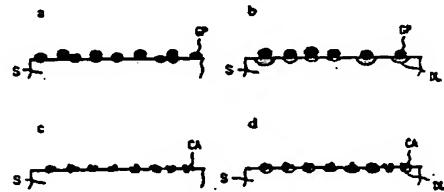
[74]专利代理机构 北京三幸商标专利事务所
 代理人 刘激扬

权利要求书2页 说明书24页 附图页数4页

[54]发明名称 低温燃料电池分离器及其生产方法

[57]摘要

低温燃料电池的分离器包括不锈钢衬底S，在所述不锈钢衬底的表面上粘附着呈点状分布的碳粒子例如石墨粒子GP或炭黑聚集体CA。优选通过渗出层DL将碳粒子粘合到衬底S的表面上。碳粒子分散层可以是分散有石墨粒子GP或炭黑聚集体CA的镀层或是通过对施加到衬底S表面上的碳粒子分散涂料中的有机成份进行热分解而形成。由于没有氧化膜的碳粒子粘附在耐酸不锈钢衬底S的表面上，所以分离器的接触电阻很低。因此，由多个燃料电池叠加在一起构成的能量发生器显示出很高的能量发生效率而且因焦耳热引起的热量损失很小。



ISSN 1008-4274

权利要求书

1. 低温燃料电池的分离器，包括：金属板衬底，所述金属板衬底上生成在腐蚀性气氛中保持耐酸性的氧化膜，在所述金属板衬底表面上施加碳粒子。
2. 根据权利要求 1 所述的低温燃料电池分离器，其特征在于金属板衬底是不锈钢板，而且在所述不锈钢衬底表面上施加的碳粒子呈点状分布。
3. 根据权利要求 2 所述的低温燃料电池分离器，其特征在于碳粒子是通过以 0.1%~50% 的压缩比滚压所述不锈钢衬底而压到不锈钢衬底表面上的。
4. 根据权利要求 1~3 中任一项所述的低温燃料电池分离器，其特征在于通过渗出层将碳粒子粘合到衬底表面上。
5. 根据权利要求 1~4 中任一项所述的低温燃料电池分离器，其特征在于碳粒子是炭黑或石墨粒子。
6. 低温燃料电池的分离器，包括：不锈钢衬底和镍一铬镀层，其中使碳离子分散并形成在所述不锈钢衬底的表面上，其特征在于所述碳粒子暴露在所述镍一铬镀层的表面上。
7. 低温燃料电池的分离器，包括：不锈钢衬底和钛、钽或钛一钽合金镀层，其中使碳离子分散并形成在所述不锈钢衬底的表面上，其特征在于所述碳粒子暴露在所述钛、钽或钛一钽合金镀层的表面上。
8. 根据权利要求 6 或 7 所述的低温燃料电池分离器，其特征在于碳粒子是炭黑或石墨粒子。
9. 根据权利要求 6 所述的低温燃料电池分离器，其特征在于镍一铬镀层包含 5 重量%~60 重量% 的铬。

10. 根据权利要求 9 所述的低温燃料电池分离器，其特征在于镍一铬镀层还包含 0.3 重量%~40 重量% 的钼。

11. 低温燃料电池的分离器，包括：不锈钢衬底，由通过渗出层粘合到所述不锈钢衬底表面上的碳粒子构成的碳粘合层和粘结到所述碳粘合层表面上的粒状碳构成的粘结层。

12. 根据权利要求 11 所述的低温燃料电池分离器，其特征在于碳粘合层由碳粒子构成，所述碳粒子是分解和消除施加到不锈钢衬底上并经过热处理的碳粒子分散涂料膜中的有机物后的残余物。

13. 生产低温燃料电池分离器的方法，包括以下步骤：

- 提供不锈钢衬底；
- 将分散了碳粒子的涂料施加到所述不锈钢衬底上，和
- 在非氧化气氛中在 300 °C~1150 °C 下对所述不锈钢衬底进行加热。

14. 根据权利要求 13 所述生产低燃料电池分离器的方法，其中在进行热处理之前以 0.1%~50% 的压缩比对涂有涂料膜的不锈钢衬底进行滚压。

说 明 书

低温燃料电池分离器及其生产方法

发明背景

本发明涉及一种可在相对低温下工作的燃料电池，例如固体大分子燃料电池的金属分离器及其生产方法。

与其它类型的燃料电池相比，固体大分子燃料电池具有能在低于 100 °C 温度下工作以及在短时间内开始工作的优点。由于这种燃料电池的结构全部由固体部件构成，所以能很容易地保持其工作状态和将其用于各种承受振动或冲击的场合。此外，由于燃料电池具有很高的功率密度所以可以将其尺寸设计得较小。燃料电池还具有很好的燃烧效率以及低噪声。考虑到这些优点，目前已经研究和尝试将燃料电池用于安装在电动汽车或类似物的发动机上。如果将燃料电池设计成能如汽油发动机那样长距离行驶，则装有这种燃料电池的汽车基本上不会对环境造成任何有害影响，这是因为 CO₂ 减少了一半，所以不会产生 SO_x 或 NO_x。

传统的固体大分子燃料电池具有固体大分子薄膜，固体大分子薄膜的分子内包含质子交换基。薄膜起质子导电电解质的作用。燃料电池的内部由薄膜分成两个区。用与其它类型的燃料电池相同的方式，在一个区上施加燃料气体例如氢气，同时在另一个区上施加氧化气例如氧气。

图 1A 中示出了燃料电池的内部结构。将空气电极 2 和氢电极 3 分别耦接到固体大分子薄膜 1 的两侧。薄膜 1 的两侧通过垫片 4 面对分离器 5。在空气电极 2 一侧的分离器 5 上形成空气送入孔 6 和空气排出孔 7，而在氢电极 3 一侧的另一个分离器 5 上形成氢气送入孔 8 和氢气排出孔 9。

在分离器 5 上形成沿氢气 g 和氧气或空气 o 的流动方向延伸的多个槽 10，以便使氢气 g 和氧气或空气 o 均匀分布。由于在分离器 5 中设有水冷却装置，所以通过供水孔 11 送入冷却水 w ，使水在分离器 5 中循环并通过排水孔 12 将水排出便可以在产生能量的过程中释放热量。

通过氢气送入孔 8 送到氢电极 3 和分离器 5 之间间隙中的氢气 g 在放电之后转变成质子。产生的质子透过固体大分子薄膜 1 接收空气电极 2 一侧的电子，并与穿过空气电极 2 和分离器 5 之间间隙的氧气或空气 o 一起燃烧。所以，通过在空气电极 2 和氢电极 3 之间施加载荷便可以得到电能。

由于每一个燃料电池的电动力极小，所以在实际应用中需要如图 1B 所示把多个燃料电池叠加在一起获得所需电压。所以将夹在分离器之间的固体大分子薄膜作为一个单元使用。由于采用了将多个燃料电池叠加在一起的结构，所以产生能量的效率明显受分离器 5 的电阻影响。为了提高产生能量的效率需要具有低接触电阻及良好导电性的分离器材料。基于此种考虑，出于与 OHM 第 83 卷 No.7 第 55~61 页和 FUJI GIHOH 第 68 卷 No.3 第 164~167 页所公开的磷酸盐燃料电池同样的想法目前采用的是石墨分离器。

这种石墨分离器是通过将石墨块切割成实体形状并将成形后的石墨块加工成各种孔和槽的形状而制成的。切割加工过程非常浪费石墨材料而且需要昂贵的加工费用，所以使整个燃料电池非常昂贵。而且切割加工过程的生产率很低。此外，用脆性石墨制成的分离器在受振动、冲击等情况下容易断裂或损坏。为了克服石墨分离器的这些缺点，日本专利申请第 180883 A1/1996 号中提出了一种通过压制、冲压等金属板生产分离器的方法。

然而，当用金属板作为燃料电池分离器的材料时，会出现其它问题。即，供氧气或空气 O_2 通过的空气电极 2 一侧的区域是 pH 值为 2~3 的酸性条件。还没有发现在强酸条件下具有足够耐酸性和显示出具有作为分离器使用时所需特性例如良好导电性、与电极具有低接触电阻和耐腐蚀的金属材料构造。

可以将耐酸材料例如不锈钢作为耐酸性条件的金属材料使用。由于这种材料的表面可形成钝化层所以其显示了极佳的耐酸性，但是这种钝化层将增加材料与氢气或空气电极的作用表面或接触电阻。接触电阻的增大意味着会在分离器与氢气和空气电极的接触面上产生大量焦耳热。产生的焦耳热将浪费性消耗由燃料电池得到的电能，从而导致产生能量的效率降低。其它金属板通常也具有在其上增大接触电阻的氧化层。

金是一种不会在表面上形成钝化或氧化层而且耐酸性气氛的金属材料。然而，金是一种非常昂贵的材料，所以实际上不可能用金作为燃料电池分离器的合适材料。铂也是一种能阻止在其表面形成钝化或氧化层和耐酸性气氛的金属材料。然而，由于铂也是一种极昂贵的材料所以也不能作为分离器材料使用。

此外，用作分离器的金属材料应该具有良好的加工性，这是因为需要通过压制、冲压等工艺制成多个可供氢气和空气穿过的槽 10 或法兰。通过在金属材料表面上使用有机大分子薄膜或润滑剂可以改善金属材料的加工性。然而，使用有机大分子薄膜或润滑剂会增加金属材料的接触电阻，所以在由多个燃料电池叠加制成的能量发生器中将产生大量焦耳热。产生焦耳热意味着损失电能和降低能量发生器的能量产生效率。

在将加有润滑剂的金属材料加工成实体形状之后，将对金属材料进行脱脂和漂洗等后处理。这种后处理增加了处理步骤，而

且还需要对废液处理支出。如果用有机或 flon 溶剂对加工的金属材料进行脱脂，则由于溶剂的扩散将会使大气质量变坏。当在金属材料表面上使用有机薄膜时，可以在不使用润滑剂的情况下将金属材料加工成实体形状。然而，由于使用了有机膜将使金属材料的接触电阻增大，而且由于有机膜耐酸性条件的能力很差所以它会从金属材料的表面剥离或溶解。

发明概述

本发明的目的在于提供一种能解决上述问题的金属分离器。通过在不锈钢表面上布置呈点状分布的碳粒子或形成金属镀层或涂料薄膜可以在不减小耐酸性的情况下确保金属分离器具有极佳的导电性和低接触电阻，其中所述碳粒子分散在不锈钢表面上。

按照本发明所述第一种低温燃料电池分离器的特征在于将碳粒子粘合到用耐腐蚀金属板制成的分离器表面上，所述金属板具有在腐蚀性气氛中预先形成的氧化层。作为衬底的代表性金属板是表面具有钝化层的不锈钢。优选将碳粒子以点状分布的形式施加到衬板表面上。

通过将碳粒子施加到不锈钢板表面上然后用 0.1%~50% 的压缩比滚压不锈钢板而将碳粒子压到不锈钢板上可提高碳粒子在不锈钢衬底上的粘合性和抗剥离性。可以在对碳粒子施压后对不锈钢板进行热处理。通过热处理在碳粒子和不锈钢衬底之间形成有利于粘合的渗出层。碳粒子可以是炭黑或石墨粒子。

第二种分离器具有涂覆了金属镀层的不锈钢衬底，其中碳粒子以暴露于大气中的形式分散。镀层可以是镍一铬、钛、钽或钛一钽层。分散在镀层中的碳粒子可以是炭黑或石墨粒子。镍一铬

镀层优选包含 5 重量%~60 重量% 的铬和选择性包含 0.3 重量%~40 重量% 的钼。

第三种分离器具有由通过渗出层粘合到不锈钢衬底表面上的碳粒子构成的碳键合层。细粒状的碳粘合到碳粘合层中碳粒子的表面上。通过将分散有碳粒子的涂料施加到不锈钢衬底上然后进行加热使有机成份分解和消失从而将碳粒子保持在不锈钢衬底表面上的方式形成碳粘合层。在非氧化气氛中在 300 °C~1150 °C 下进行热处理可以完成涂料薄膜的热分解。在进行热处理之前，可以用 0.1%~50% 的压缩比滚压用涂料薄膜涂覆的不锈钢板。

附图说明

图 1A 是表示用固体大分子薄膜作为电解质的传统燃料电池内部结构的剖面图；

图 1B 是处于分解状态下的同一传统燃料电池的俯视图；

图 2A 是表示不锈钢衬底的剖面图，所述不锈钢衬底上施加了呈点状分布的石墨粒子；

图 2B 是表示不锈钢衬底的剖面图，所述不锈钢衬底表面上具有通过渗出层粘结的石墨粒子；

图 2C 是表示不锈钢衬底的剖面图，所述不锈钢衬底上聚集的炭黑呈点状分布；

图 2D 是表示不锈钢衬底的剖面图，所述不锈钢衬底表面上具有通过渗出层粘合的聚集状炭黑；

图 3A 是表示涂覆有汽相沉积镍—铬层的不锈钢衬底的剖面图，所述镍—铬层中分散着石墨粒子；

图 3B 是表示涂覆有电镀镍—铬层的不锈钢衬底的剖面图，所述镍—铬层中分散着石墨粒子；

图 3C 是表示涂覆有汽相沉积镍一铬层的不锈钢衬底的剖面图，所述镍一铬层中分散着聚集的炭黑；

图 3D 是表示涂覆有电镀镍一铬层的不锈钢衬底的剖面图，所述镍一铬层中分散着聚集的炭黑；

图 4A 是表示涂覆有金属镀层的不锈钢衬底的剖面图，所述金属镀层中分散着石墨粒子；

图 4B 是表示涂覆有金属镀层的不锈钢衬底的剖面图，所述金属镀层中分散着聚集的炭黑；

图 5 是表示具有碳粘合层的不锈钢衬底的剖面图，所述碳粘合层上粘结着细粒状的碳。

本发明优选实施例

本发明采用具有优良耐酸性的奥氏体或奥氏体一铁氧体两相不锈钢作为衬底。由于燃料电池的分离器衬底需要耐受非氧化酸以及氧化酸的侵蚀，所以这种不锈钢除了包含铬外还包含作为合金成份的镍以提高耐酸性。由于衬底自身具有极佳的耐酸性，所以用这种不锈钢制成的分离器即使在其表面上形成的镀层出现气泡或裂缝时也能显示出其足够的耐酸性。

适用于此目的的奥氏体不锈钢包含 14 重量% ~ 35 重量% 的铬和 5 重量% ~ 60 重量% 的镍。奥氏体不锈钢的组份如下所述：0.008 重量% ~ 0.2 重量% 的碳，0.05 重量% ~ 5.0 重量% 的硅，0.1 重量% ~ 5.0 重量% 的锰，5.0 重量% ~ 60 重量% 的镍，14 重量% ~ 35 重量% 的铬，除了选择性的元素和不可避免出现的杂质外用铁进行平衡。

适用于此目的的奥氏体一铁氧体两相不锈钢包含 17 重量% ~ 35 重量% 的铬和 2 重量% ~ 60 重量% 的镍。两相奥氏体不锈钢的

组份如下所述：0.008 重量%~0.2 重量% 的碳， 0.05 重量%~5.0 重量% 的硅， 0.1 重量%~5.0 重量% 的锰， 2.0 重量%~60 重量% 的镍， 17 重量%~35 重量% 的铬，除了选择性的元素和不可避免出现的杂质外用铁进行平衡。

如果不锈钢中铬的含量小于 14 重量%，分离器在耐受含有氧化酸的腐蚀性气氛方面的能力较差。相反，如果铬含量超过 35 重量%，不锈钢将显示出很大的重塑阻力，从而导致在压制或类似工艺过程中表现出很差的可加工性。如果镍含量小于 2 重量%，分离器在包含非氧化酸的腐蚀性气氛下将表现出较差的耐酸性。镍的耐酸性作用在镍含量为 60 重量% 时达到饱和，而且还没有发现通过添加多于 60 重量% 的镍能进一步提高耐酸性的效果。此外，添加过量的镍会增加不锈钢的成本。

通过添加钼、铜和氮中的一种或多种可以进一步提高不锈钢衬底的耐酸性。当燃料电池在为增加功率密度而加大单位表面电流的状态下工作时，分离器暴露于具有较低 pH 值的酸性条件下。通过在不锈钢中添加 0.2 重量%~7 重量% 的钼、0.1 重量%~5 重量% 的铜和 0.02 重量%~0.5 重量% 的氮中的一种或多种可以抑制在这种恶劣条件下产生的腐蚀性侵蚀。必要时通过添加少量的钛、铌和/或锆也可以提高不锈钢的耐酸性。

第一种分离器的不锈钢衬底上直接粘结着呈点状分布的碳粒子例如石墨粒子或炭黑聚集体。石墨粒子和炭黑是高纯度和具有极好耐酸性的石墨粒子和炭黑，其不受因杂质而形成的氧化膜或类似物的影响。高纯度石墨粒子或炭黑还能有效防止燃料电池的固体大分子薄膜出现混杂。如果使用这种以煤灰或焦油形式出现的未烧尽的石油或焦炭产品作为碳粒子，则由于其中含有杂质所以容易在碳粒子上形成氧化膜或类似物。这种杂质可能会导致固体大分子薄膜混杂和使燃料电池自身的特性变差。

石墨粒子或炭黑聚集体等碳粒子在其表面上没有形成氧化膜的情况下显示出较低的接触电阻和很好的耐酸性。此外，粘结着碳粒子的不锈钢表面与空气和氢电子具有良好的亲合力，这是由于这些电极主要由含碳材料制成。因此，由于分离器的接触电阻极低，所以由多个燃料电池叠加在一起制成的能量发生器能以很低的焦耳热有效地输出电能。

如图 2A 所示，由于每个石墨粒子 GP 的尺寸比炭黑大，所以可以将其单独施加到不锈钢衬底 S 的表面上。通过用浸透石墨粒子的毛毡擦拭不锈钢衬底 S 或滚压缠有这种毛毡的不锈钢衬底可以完成施加呈点状分布的石墨粒子 GP 的过程。在施加石墨粒子 GP 后通过用 0.1%~50% 的压缩比滚压不锈钢衬底可以将石墨粒子 GP 压到不锈钢衬底 S 的表面上。用同样的方法也可以将炭黑施加到不锈钢衬底 S 上。

如图 2B 所示，在将石墨粒子 GP 压到不锈钢衬底 S 上之后，优选对不锈钢衬底 S 进行热处理以便在不锈钢衬底 S 和每个石墨粒子 GP 之间形成渗出层 DL。渗出层 DL 有效地提高了石墨粒子 GP 与不锈钢衬底 S 的粘合性。因此在对不锈钢进行冲压和将其制成波纹状的过程中当不锈钢衬底 S 受到模具的摩擦时，提高了粘合性的石墨粒子 GP 不会脱离不锈钢衬底 S 的表面。由于通过渗出层 DL 能保证对不锈钢衬底 S 的导电性，所以渗出层 DL 还有利于进一步减小接触电阻。

炭黑包括 $1\mu\text{m}$ 或尺寸更小的极细粒子以及聚集体。如图 2C 所示，当用炭黑作为含碳材料时，将炭黑以聚集体 CA 的形式粘结到不锈钢衬底 S 的表面上。还可以用与石墨 GP 相同的方式将炭黑聚集体 CA 压到不锈钢衬底 S 的表面上。如图 2D 所示，借助于通过压制之后的热处理形成的渗出层 DL 同样可以提高炭黑聚集体 CA 的粘合性。

如图 2A~图 2D 所示, 优选使石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 以点状分布的形式分散到不锈钢衬底 S 的表面上。点状分布可以抑制在加工例如弯曲或拉制变形的过程中出现应力积聚, 从而可以防止石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 剥离或脱离。如果在每个粒子或聚集体粘合在一起的状态下完全用石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 涂覆不锈钢表面衬底 S, 则在任何情况下都不会释放因加工而引起的应力, 因此所述应力将积聚在不锈钢衬底 S 和石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 之间的边界上。由于这种应力积聚, 石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 极易从不锈钢衬底 S 上剥离或脱离。

如图 3A~图 3D 所示, 第二种低温燃料电池的分离器具有金属镀层, 所述金属镀层中分散有碳粒子。例如, 在不锈钢衬底 S 的表面上形成的镍一铬镀层 PL 包含分散在镀层中的碳粒子, 例如石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA。这种分离器不仅适用于图 1 所示的固体大分子燃料电池, 而且还适用于碱性燃料电池。

通过汽相沉积涂覆法、电镀法等形式形成分散有石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 的镀层 PL。在采用汽相沉积涂覆的情况下, 激活不锈钢衬底的表面, 将碳粒子施加到激活的表面上, 并将具有预定流率的镍和铬蒸汽引入所述表面使镍和铬沉积。在电镀的情况下, 使用包含镍和氯化铬以及悬浮碳粒子的复合电镀液在沉积镍和铬的过程中共同沉淀碳粒子。

在使每个粒子暴露于镀层 PL 表面上的状态下使石墨粒子 GP 分散到镍一铬镀层 PL 中。通过形成镍一铬镀层 PL 的条件来控制石墨粒子 GP 的暴露程度。在形成镍一铬镀层 PL 期间可以在石墨粒子上沉积一定量的镍或铬。然而, 由于粘合性较差, 所以沉积在石墨粒子 GP 上的镍或铬层自然会剥离, 因此不需要进

行任何特殊处理就可以使石墨粒子 GP 在表面上暴露。既使是沉积在石墨粒子 GP 上的镍或铬层很难剥离，必要时通过刷光镍—铬镀层也能方便地将这种镍或铬层除去。

如图 3A 所示，当使用尺寸较大的石墨粒子 GP 时，在暴露状态下使每个石墨粒子 GP 都分散到镍—铬镀层 PL 中。

如图 3B 所示，当石墨粒子 GP 的尺寸与镍—铬层 PL 的厚度相当时，每个石墨粒子 GP 在镍—铬镀层 PL 和不锈钢衬底 S 之间起直接导电通道的作用。如图 3C 所示，当在不锈钢衬底 S 上形成较薄的镍—铬镀层时，这种直接导电通道的总量减少，但是由于石墨粒子 GP 暴露于镍—铬镀层 PL 表面上，所以获得了较低的接触电阻。分散在镍—铬镀层 PL 中的石墨粒子 GP 对改善镍—铬镀层自身的导电性也是很有效的。

另一方面，如图 3C 或图 3D 所示，呈 $1\mu\text{m}$ 极细粒子状或尺寸更小并易于聚集的炭黑以炭黑聚集体 CA 的形式分散在镍—铬镀层 PL 中。这种炭黑聚集体 CA 的分散对减小镍—铬镀层 PL 的接触电阻也是很有效的。

当碳粒子以 $0.01\text{mg}/\text{m}^2\sim 500\text{mg}/\text{m}^2$ 的比率分散到镀层 PL 中时，能够清楚地看到碳粒子例如石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 在减小接触电阻或改善导电性方面的效果。如果分散的碳粒子量少于 $0.01\text{mg}/\text{m}^2$ ，则由于缺乏碳粒子而使暴露于镀层 PL 上的碳粒子总量减少，从而不能有效达到减小接触电阻的效果。相反，如果分散的碳粒子量超过 $500\text{mg}/\text{m}^2$ ，则减小接触电阻的效果达到饱和，但是镀层 PL 将脆化而且会从不锈钢衬底 S 上脱离。

分散有石墨粒子 GP 的镍—铬镀层 PL 对氧化和非氧化酸具有足够的耐受性。由于这种极好的耐酸性，镍—铬镀层 PL 有效地提高了装在低温燃料电池内和不仅暴露于氧气或空气 O 通道

的氧化条件下而且还暴露于某一间隙的非氧化条件中的分离器的寿命。

就氧化和非氧化气氛中的耐酸性而言，镍一铬镀层 PL 优选包含 5 重量%~60 重量% 的铬。如果镍铬镀层 PL 中铬的含量小于 5 重量%，则镍一铬镀层 PL 在氧化气氛中的耐酸性较差。反之，如果铬的含量超过 60 重量%，则由于镍含量的短缺会使非氧化条件下的耐酸性较差。通过添加 0.3 重量%~40 重量% 的钼可以进一步改善镍一铬镀层 PL 的耐酸性。当钼的含量为 0.3 重量% 或更多时，钼在改善耐酸性方面的作用将很明显。但是，过量添加多于 40 重量% 的钼反而使耐酸性下降。

在碳粒子上不形成氧化膜的情况下，碳粒子例如石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 显示出足够低的接触电阻和极佳的耐酸性。此外分散有石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 的镍一铬镀层与空气电极和氢电极具有良好的亲合性，所述电极用含碳材料制成而且与燃料电池中的分离器保持接触。这种良好的亲合性可使接触电阻进一步降低。因此，当将多个电池叠加在一起时，构成了性能极好的能量发生器同时抑制了焦耳热的产生。

由于碳粒子牢固地保持在镀层 PL 中所以可以避免在压制或冲压涂覆有镀层 PL 的不锈钢衬底 S 时碳粒子从镍一铬镀层 PL 上剥离。由于具有良好的可加工性，所以涂覆有镀层 PL 的不锈钢衬底 S 可以重塑成适合分离器的预定形状。

可以用钛、钽或钛一钽合金层代替镍一铬层作为镀层 PL。通过在不锈钢衬底 S 表面上施加碳粒子然后以预定流率引入钽和钛蒸汽中的一种或两种使钽和/或钛沉积在不锈钢衬底 S 的表面上便可以在不锈钢衬底 S 的表面上形成分散有碳粒子例如石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 的钛、钽或钛一钽合金镀层 PL。

钽或钛甚至可以与少量氧气反应并在镀层 PL 上形成钝化膜。涂有钝化膜的镀层 PL 显示出极佳的抗氧化酸和抗非氧化酸的特性。在同样意义下，钽-钛合金镀层 PL 也具有极好的耐酸性。此外，由于钽和钛易与碳反应，所以碳粒子能牢固地保持在钽、钛或钽-钛合金镀层 PL 中。

如图 4A 所示，尺寸较大的石墨粒子 GP 以暴露的形式分散在镀层 PL 中。当所用炭黑的尺寸极小时，炭黑聚集体 CA 以图 4B 所示形式分散在镀层 PL 中。

石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 的暴露程度受形成镀层 PL 的条件控制。在这种情况下，由于粘合性较差，分散在石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 上的钽、钛或钽-钛合金层也会自然剥离因而不需要进行任何特殊处理就可以使石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 暴露在镀层 PL 的表面上。

通过汽相沉积涂覆法形成的钽、钛或钽-钛合金镀层 PL 比较薄，所以石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 在镀层 PL 的表面和不锈钢衬底 S 之间起直接导电的通道作用。

通过其它方法也可以使碳粒子例如石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 分散在不锈钢衬底 S 的表面上。即，将分散有石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 的涂料施加到不锈钢衬底 S 的表面上，然后通过加热分解和消除涂料膜中的有机成份从而将石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 保持在不锈钢衬底 S 上。用这种方式生产的第三种低温燃料电池的分离器包括不锈钢衬底 S，形成在不锈钢衬底 S 上的碳粘合层 L₁ 和粘结到碳粘合层 L₁ 的碳粒子上的粒状碳粘合层 L₂。

通过制备分散有碳粒子的涂料，把所述涂料施加到不锈钢衬底 S 上，然后在非氧化条件下在 300 °C~1150 °C 下加热不锈钢衬底 S，便可以制成由碳粒子构成的碳粘合层 L₁ 和粘结层 L₂。

通过这种加热处理可以使涂料的有机成份分解并从不锈钢衬底 S 的表面上消除。在这种情况下，对涂料的种类没有限制。例如可以用聚酯、丙烯酸类、聚烯烃、聚亚胺酯或它们的混合物作为涂料成份。

在用重量分成 100 份的涂料中碳粒子的混合比优选为 0.05 重量份~60 重量份。如果混合比小于 0.05 重量份，则不能形成充分分散有碳粒子的碳粘合层 L_1 ，因此，不锈钢衬底 S 的接触电阻不能减小到较低水平。相反，如果添加的碳粒子量超过 60 重量份以上，则会使涂料的可用性很差而且还会使涂料膜与不锈钢衬底 S 的粘合性变差。

施加到不锈钢衬底 S 上且分散有碳粒子的涂料膜优选为 $5\mu\text{m}$ 或更薄，以便确保碳粘合层 L_1 与不锈钢衬底 S 的粘合性。如果涂料膜的厚度超过 $5\mu\text{m}$ ，在热处理过程中将会产生过多的气体并使涂料膜剥离。

在例如氮气、氮气+氢气或氩等非氧化条件下在 $300\text{ }^\circ\text{C}$ ~ $1150\text{ }^\circ\text{C}$ 下对涂有碳粒子分散涂料膜的不锈钢衬底 S 进行加热。分散在涂料膜中的碳粒子不会由于在非氧的气氛中进行热处理而氧化。保持在不锈钢衬底 S 表面上，通过热处理使碳部分渗透到不锈钢中，从而形成碳粘合层 L_1 ，在该粘合层上碳粒子通过渗出层 DL 粘合到不锈钢衬底 S 上。

通过热处理使涂料膜中的有机成份如树脂分解且部分分解残余物留在不锈钢衬底 S 的表面上。从有机成份中衍生的部分碳分解残余物转移成碳粘合层 L_1 ，剩下的部分转化成粘合到碳粘合层 L_1 上的粘结层 L_2 。由于碳粘合层 L_1 和粘结层 L_2 具有在不覆盖整个不锈钢衬底 S 之表面的情况下将每个粒子粘合到一起的结构，所以在形成碳粘合层 L_1 和粘结层 L_2 之后，不锈钢衬底 S

保持了良好的可加工性。在压制或冲压过程中粘结层 L_2 起润滑剂的作用，所以进一步提高了不锈钢衬底 S 的可加工性。

在热处理之前可以用 0.1%~50% 的压缩比对涂覆有涂料膜的不锈钢衬底 S 进行滚压。这种滚压有效地提高了碳粒子与不锈钢衬底 S 的粘合性。通过滚压而改善了粘合性的碳粒子在后续步骤的热处理过程中加速了向不锈钢衬底 S 的渗透。因此，碳粘合层 L_1 牢固地粘合到不锈钢衬底 S 上，从而有效地减小了接触电阻。当压缩比为 0.1% 或更大时能明显看出粘合时的滚压效果。但是 50% 以上的过大滚压压缩比会导致不锈钢衬底 S 过度变形并引起涂料膜剥离。这种加快渗透反应的效果在压缩比为 50% 时达到饱和。

由于粒状碳的粘结层 L_2 在不锈钢衬底 S 表面上起润滑剂的作用，所以甚至可以将不锈钢衬底 S 重塑成复杂的分离器形状而且不会出现断裂或裂缝。此外，由于在不锈钢衬底 S 表面上存在碳粘合层 L_1 和粘结层 L_2 ，所以用这种方式得到的分离器显示出极低的接触电阻。因此，装有这种分离器的能量发生器具有极高的能量产生效率而且在受严重腐蚀性酸性条件作用的工作条件下具有很强的耐受性。

由于碳粒子的碳粘合层 L_1 通过渗出层 DL 粘合到不锈钢衬底 S 上，所以碳粘合层 L_1 牢固地固定到不锈钢衬底 S 上。因此，即使在重塑过程中在不锈钢衬底 S 中产生弯曲或伸长等变形，也会抑制在碳粘合层 L_1 中的应力积聚，从而防止碳粘合层 L_1 从不锈钢衬底 S 上剥离。碳粘合层 L_1 的极佳粘合性使得能够将不锈钢衬底 S 重塑成适合分离器的合适形状。在形成分散了碳粒子的涂料膜之后但在热处理之前通过滚压能进一步提高不锈钢的可加工性。

石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 等碳粒子显示出极低的接触电阻和极佳的耐酸性而且其上没有形成氧化膜。此外，碳粘合层 L_1 和粘结层 L_2 与用含碳材料制成并与分离器保持接触的空气电极和氢电极具有很好的亲合性，所以可进一步减小接触电阻。因此，由多个燃料电池叠合在一起构成的能量发生器在很少焦耳热的情况下具有很高的能量产生效率。

通过以下实施例将使本发明的其它特征更加明显。然而，这些实施例对本发明的范围并不构成任何限制。

实施例 1

用具有表 1 所示组份的不锈钢板作为不锈钢衬底 S。用平均尺寸为 $0.05\mu\text{m}$ 的炭黑和平均尺寸为 $3\mu\text{m}$ 的石墨粒子作为碳粒子。

表 1：在该实施例中使用的不锈钢

钢的种类	除铁之外的组份(重量%)							
	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	Cu	N
A	0.05	0.57	0.91	8.9	18.5	—	—	—
B	0.02	0.48	0.55	25.3	24.5	5.1	0.52	0.15
C	0.01	0.83	0.66	6.1	24.8	3.0	0.45	0.13

钢 A：奥氏体不锈钢

钢 B：奥氏体不锈钢

钢 C：奥氏体-铁氧体两相不锈钢

通过用浸透炭黑或石墨粒子的毛毡擦拭不锈钢板将炭黑或石墨粒子涂成粘合率为 $5\text{mg}/\text{m}^2\sim 10\text{mg}/\text{m}^2$ 的点状分布形式。由于粒子尺寸很小，涂到不锈钢衬底 S 表面上的炭黑呈点状分布的聚集体 CA 的形式。单独涂到不锈钢衬底 S 表面上的石墨粒子 GP 呈非聚集的点状形式。

随后为了提高与不锈钢衬底 S 的粘合性用 2%~3% 的压缩比滚压不锈钢衬底 S 以便把炭黑聚集体 CA 或石墨粒子 GP 压到不锈钢衬底 S 的表面上。在 $700\text{ }^\circ\text{C}$ 下将一些样品加热 10 秒钟以便在炭黑聚集体 CA 或石墨粒子 GP 和不锈钢衬底 S 之间生成渗出层 DL。

在将点状分布的碳粒子涂到不锈钢衬底 S 上之后，测量不锈钢衬底 S 的接触电阻和耐酸性。通过在载荷为 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 的情况下使不锈钢衬底 S 与碳电极保持接触并检测它们之间的接触电阻便可测出接触电阻。通过在 $90\text{ }^\circ\text{C}$ 下将不锈钢衬底 S 浸入 pH 值为 2 的硫酸溶液中并在预定的时间周期后测量腐蚀损耗便可测得耐酸性。对用厚度为 $5\mu\text{m}$ 的镍、铜或铬镀层涂覆不锈钢板 A 制成的样品进行同样的比较试验。

试验结果示于表 2 和表 3 中。表 2 中示出了不锈钢衬底的接触电阻和耐酸性，所述不锈钢衬底 S 上压制了呈点状分布的碳粒子，而表 3 中示出的是经进一步热处理后产生渗出层 DL 的不锈钢衬底 S 的接触电阻和耐酸性。

从表 2 中能明显看出，1~6 号样品即其上压制了呈点状分布的碳粒子的不锈钢衬底具有燃料电池分离器所需的低接触电阻和极佳耐酸性的特征。如表 3 中所示，第 13~18 号样品在通过热处理产生渗出层 DL 后其接触电阻进一步降低。

另一方面,第7~9号中任一种样品即没有粘结碳粒子的不锈钢衬底在用作燃料电池的分离器时接触电阻过高。第10、12号样品即涂覆了镍和铬镀层的不锈钢衬底显示出较低的接触电阻,但检测出其有较大的腐蚀损耗,所以这些衬底不适合作为在低pH值的腐蚀性气氛下使用的燃料电池分离器。第11号样品的接触电阻和耐酸性都较差,所以不适合作为燃料电池的分离器。

表2:压制点状分布的碳粒子在接触电阻和
腐蚀损耗方面的效果
(没有渗出层)

样品序号	钢的种类	施加的 碳粒子	接触电阻 $m\Omega \cdot cm^2$	腐蚀损耗 $g/m^2 \cdot h$	备注
1	A	炭黑	15	0.00092	本发明
2	B	炭黑	21	0.00012	
3	C	炭黑	13	0.00015	
4	A	石墨粒子	32	0.00089	
5	B	石墨粒子	33	0.00014	
6	C	石墨粒子	25	0.00011	
7	A	未粘合	307	0.00090	比较例
8	B	未粘合	279	0.00011	
9	C	未粘合	288	0.00012	
10	—	Ni电镀	26	0.17	
11	—	Cu电镀	120	0.098	
12	—	Cr电镀	36	0.0025	

表 3: 压制了碳粒子后进行热处理的不锈钢衬底的
接触电阻和腐蚀损耗

样品序号	钢的种类	施加的碳粒子	接触电阻 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$	腐蚀损耗 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$
13	A	炭黑	5	0.00090
14	B	炭黑	7	0.00015
15	C	炭黑	6	0.00018
16	A	石墨粒子	7	0.00097
17	B	石墨粒子	8	0.00013
18	C	石墨粒子	7	0.00019

实施例 2

在实施例 2 中, 用表 1 中所示的不锈钢板作为衬底。通过下述汽相沉积涂覆或电镀法在每个不锈钢衬底的表面上形成分散了碳粒子的镍—铬镀层。

方法 1: 用汽相沉积涂覆法形成镍—铬镀层

用平均尺寸为 $2\mu\text{m}$ 的石墨粒子和平均尺寸为 $0.03\mu\text{m}$ 的炭黑作为碳粒子。在真空腔中激活不锈钢板的表面之后, 用浸透碳粒子的毛毡擦拭所述表面从而以 $3\text{g}/\text{m}^2 \sim 15\text{g}/\text{m}^2$ 的粘合比将碳粒子施加到不锈钢表面上。随后, 在同一真空腔内以 $0.005\mu\text{m}/\text{sec}$ 的沉积速度同时喷镀镍和铬。

用这种方法形成的镍—铬镀层 PL 的厚度为 $0.5\mu\text{m}$, 而且铬含量为 23 重量%。如图 3A 和图 3C 所示, 石墨粒子 GP 和炭黑聚集体 CA 分别分散在每个镀层 PL 中。

方法 2: 用电镀法形成镍—铬镀层

通过在包含 0.6mol/l NiCl_2 、 0.9mol/l CrCl_2 、 2.2mol/l NH_4Cl 、 0.8mol/l H_3BO_3 、 1.2mol/l 甘氨酸和 3 重量% 表面活性

剂的水溶液中以 300g/l 的比例悬浮平均尺寸为 $0.03\mu\text{m}$ 的炭黑来制备电镀液。将表面已激活的不锈钢板浸入保持 40°C 的电镀液中并以 $10\text{A}/\text{dm}^2$ 的电流密度进行电镀。

用这种方法形成的镍一铬镀层厚度为 $5\mu\text{m}$ ，而且在镀层 PL 金属组份的基础上铬的含量为 40 重量%。如图 3B 和图 3D 所示，石墨粒子 GP 和炭黑聚集体 CA 分别分散在每个镀层 PL 中。

用与实施例 1 相同的方式测量涂覆了碳粒子分散镀层 PL 的每个不锈钢衬底 S 的接触电阻和耐酸性。试验结果示于表 4 中。从表 4 中可以看出，涂覆了碳粒子分散镀层 PL 的任何一个不锈钢衬底 S 都具有足够低的接触电阻和极佳的耐腐蚀性，所以适合作为燃料电池的分离器。

表 4：碳粒子分散镀层在接触电阻和耐腐蚀性方面的效果

样品序号	钢的种类	镀层	施加的碳粒子	接触电阻 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$	腐蚀损耗 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$	备注
1	A	含有 23 重量% Cr 的 Ni-Cr 镀层	炭黑	5	0.00023	方法 1
2	B		炭黑	5	0.00010	
3	C		炭黑	4	0.00011	
4	A		石墨粒子	10	0.00019	
5	B		石墨粒子	9	0.00010	
6	C		石墨粒子	10	0.00012	
7	A	含有 40 重量% Cr 的 Ni-Cr 镀层	炭黑	6	0.00035	方法 2
8	B		炭黑	6	0.00018	
9	C		炭黑	6	0.00018	
10	A		石墨粒子	12	0.00030	
11	B		石墨粒子	11	0.00010	
12	C		石墨粒子	11	0.00015	

实施例 3

用表 1 中示出的不锈钢板作为衬底，而且用真空淀积法在不锈钢衬底上形成分散有碳粒子的镀层。

用平均尺寸为 $2\mu\text{m}$ 的石墨粒子和平均尺寸为 $0.03\mu\text{m}$ 的炭黑作为碳粒子。在真空腔中激活每个不锈钢板的表面之后，用浸透碳粒子的毛毡擦拭所述表面从而以 $5\text{g}/\text{m}^2\sim15\text{g}/\text{m}^2$ 的粘合比将碳粒子施加到不锈钢衬底的表面上。随后，在同一真空腔内以 $0.004\mu\text{m}/\text{sec}$ 的淀积速度同时喷镀钽和钛中的一种或两种。用这种方法形成的镀层 PL 的厚度为 $0.5\mu\text{m}$ 。如图 4A 和图 4B 所示，石墨粒子 GP 或炭黑聚集体 CA 分别分散在每个镀层 PL 中。

用与实施例 1 相同的方式测量涂覆了分散有碳粒子的镀层 PL 的每个不锈钢衬底 S 的接触电阻和耐酸性。试验结果示于表 5 和 6 中。从表 5 和 6 中可以看出，涂覆了碳粒子分散镀层 PL 的任何一个不锈钢衬底 S 都具有足够低的接触电阻和极佳的耐酸性，所以满足作为燃料电池分离器的特性需要。

表 5：分散有碳粒子的真空淀积钽和钛层在接触电阻和耐腐蚀性方面的效果

样品序号	钢的种类	镀层	施加的碳粉末	接触电阻 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$	腐蚀损耗 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$	备注
1	A	Ta	炭黑	4	0.00025	本发明
2	B		炭黑	3	0.00010	
3	C		炭黑	3	0.00018	
4	A		石墨粒子	7	0.00033	
5	B		石墨粒子	10	0.00012	
6	C		石墨粒子	8	0.00019	
7	A	Ti	炭黑	5	0.00045	
8	B		炭黑	5	0.00018	
9	C		炭黑	5	0.00010	
10	A		石墨粒子	9	0.00040	
11	B		石墨粒子	7	0.00016	
12	C		石墨粒子	7	0.00021	

表 6：分散有碳粒子的真空淀积钽-钛层在接触电阻和
耐腐蚀性方面的效果

样品序号	钢的种类	镀层中的 Ti 含量(重量%)	施加的碳粉末	接触电阻 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$	腐蚀损耗 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$
13	A	20	炭黑	7	0.00022
14	B		炭黑	9	0.00011
15	A		石墨粒子	8	0.00011
16	A		石墨粒子	9	0.00025
17	B		石墨粒子	9	0.00011
18	C		石墨粒子	11	0.00010
19	A		炭黑	8	0.00035
20	B	40	炭黑	6	0.00015
21	C		炭黑	9	0.00016
22	A		石墨粒子	11	0.00036
23	B		石墨粒子	13	0.00012
24	C		石墨粒子	10	0.00019
25	A	70	炭黑	8	0.00037
26	B		炭黑	8	0.00014
27	C		炭黑	8	0.00010
28	A		石墨粒子	11	0.00038
29	B		石墨粒子	10	0.00011
30	C		石墨粒子	14	0.00016

实施例 4

用表 1 所示不锈钢板作为衬底。

通过在水性聚酯尿烷涂料中分散作为碳粒子使用的平均尺寸为 $1\mu\text{m}$ 的石墨粒子或平均尺寸为 $0.05\mu\text{m}$ 的炭黑来制备施加到不锈钢衬底 S 上的各种涂料。

在将每种涂料以厚度为 $0.2\mu\text{m} \sim 1.2\mu\text{m}$ 的膜形式施加到不锈钢衬底 S 上之后，在 N_2 气氛中在 750°C 下将不锈钢衬底 S 加热 5 秒钟。通过热处理将涂料中的有机物分解。以分解残余物形式存在的粒状碳作为平均厚度为 $0.1\mu\text{m} \sim 1.0\mu\text{m}$ 的粘结层 L_2 的一部分留在不锈钢衬底 S 的表面上。有机物分解后剩余的碳粒子转变成平均厚度为 $0.01\mu\text{m} \sim 1.0\mu\text{m}$ 的碳粘合层 L_1 ，粘合层 L_1 通过渗出层 DL 粘合到不锈钢衬底 S 上。

用与实施例 1 相同的方式检测涂覆了碳粒子的碳粘合层 L_1 和粒状碳的粘结层 L_2 的每个不锈钢衬底 S 的接触电阻和耐酸性。试验结果示于表 7 中。从表 7 中可以看出，任何涂覆了碳粘合层 L_1 和粘结层 L_2 的不锈钢衬底 S 都显示出足够低的接触电阻和极佳的耐酸性，所以适合作为燃料电池的分离器。

表 7：用涂有粘合和粘结层的不锈钢制成的各种分离器的
接触电阻和腐蚀损耗

样品序号	钢的种类	施加的碳粒子	碳粘合层的平均厚度(μm)	接触电阻 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$	腐蚀损耗 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$	备注
1	A	炭黑	0.01	5	0.00089	本发明
2	B	炭黑	0.02	4	0.00015	
3	C	炭黑	0.02	5	0.00018	
4	A	石墨粒子	0.8	8	0.00093	
5	B	石墨粒子	0.8	8	0.00013	
6	C	石墨粒子	1.0	7	0.00014	

实施例 5

在与实施例 4 相同的条件下将分散了碳粒子的涂料施加到表 1 所示的每个不锈钢板 B 上之后, 以表 8 中所示压缩比对不锈钢板进行冷轧。然后在与实施例 4 相同的条件下对钢板进行热处理以便分解和消除涂料中的有机物。用与实施例 4 相同的方式测量得到的涂有碳粘合和粘结层 L_1 、 L_2 的不锈钢衬底 S 的接触电阻和耐酸性。试验结果示于表 8 中。

从表 8 和表 7 的对比中可以看出在热处理之前进行冷轧有利于减小接触电阻, 而接触电阻减小的程度随压缩比的增加而变大。

表 8: 压缩比在接触电阻和腐蚀损耗方面的效果

样品序号	施加的碳粒子	减速比%	接触电阻 $m\Omega \cdot cm^2$	腐蚀损耗 $g/m^2 \cdot h$
7	石墨粒子	0.2	7.1	0.00016
8	石墨粒子	1.6	5.8	0.00015
9	石墨粒子	5.8	5.1	0.00017
10	石墨粒子	18.7	4.3	0.00017
11	石墨粒子	35.6	3.9	0.00016
12	石墨粒子	48.8	3.2	0.00016
13	炭黑	26.6	3.6	0.00015
14	炭黑	49.1	2.9	0.00013

工业应用

按照上述本发明所述的分离器由为提高导电性而涂覆了碳粒子分散层的不锈钢衬底构成。碳粒子分散层是通过将碳粒子以点状分布形式压到不锈钢衬底表面而形成或是通过在不锈钢衬底的表面上形成分散有碳粒子的镀层或涂料层而构成。有利于提高导电性的碳粒子分散层可以通过分解和消除形成在不锈钢衬底表面上的碳粒子分散涂料层的有机物来制备。

以点状分布形式粘合碳粒子的不锈钢衬底具有极佳的导电性和耐腐蚀性，所以适合作为低温燃料电池的分离器使用。由于其优良的特性，使得由多个低温燃料电池叠加构成的能量发生器具有在长时间处于强酸条件下而极少腐蚀和当多个燃料电池叠加时能抑制从焦耳热衍生出的热量损失的良好特性。此外，能在不增加材料和生产成本的前提下生产出具有良好加工性的金属分离器。

说 明 书 附 图

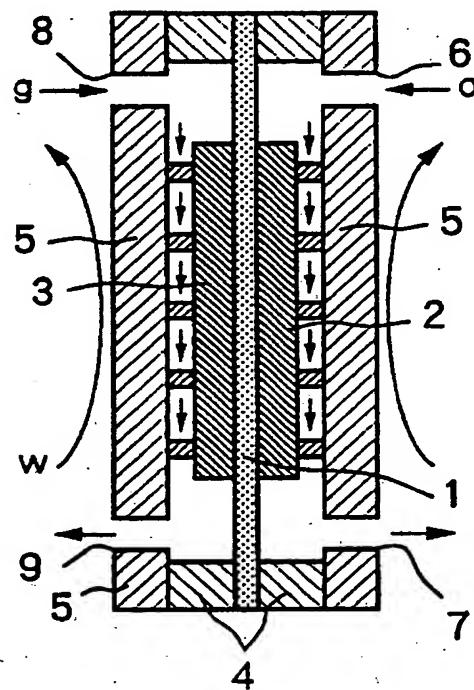


图 1A

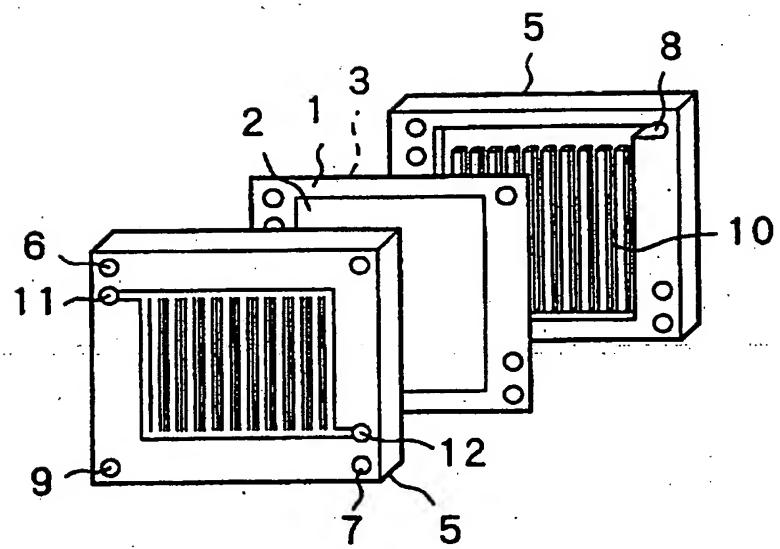


图 1B

00-04-06

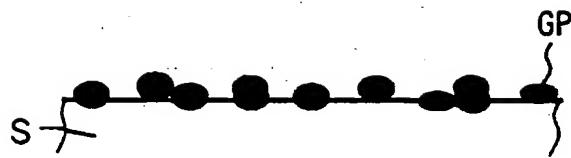


图 2A

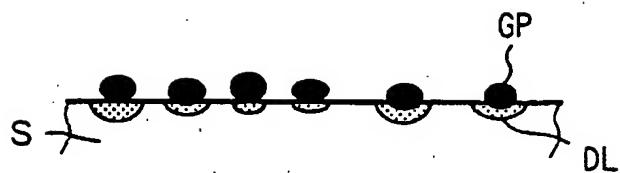


图 2B

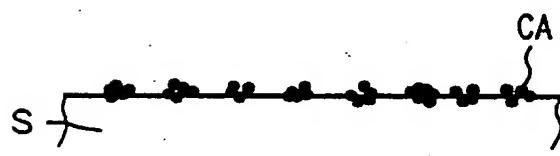


图 2C

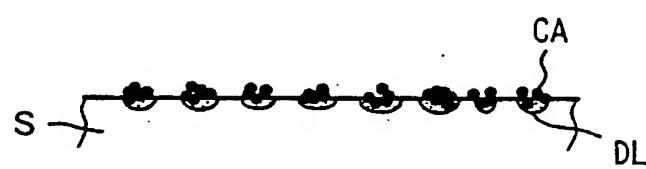


图 2D

00-04-06

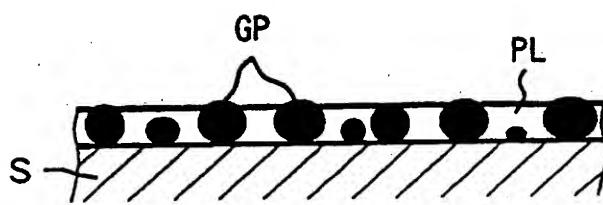


图 3A

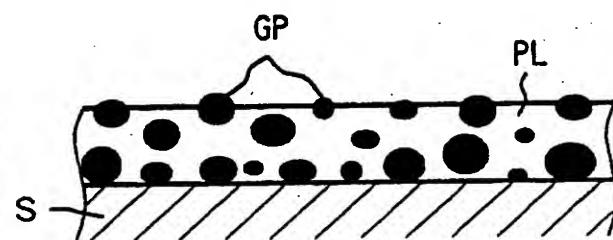


图 3B

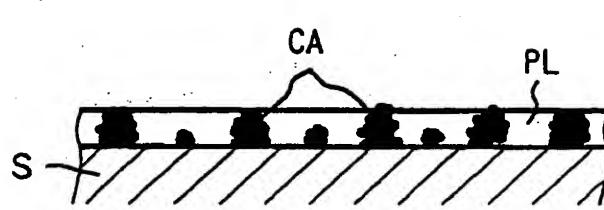


图 3C

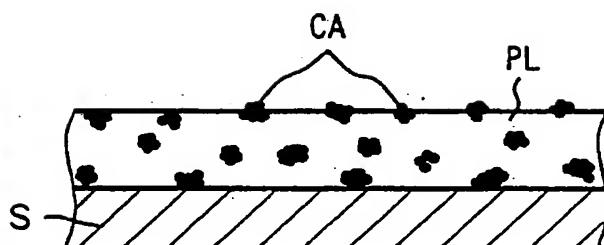


图 3D

00-04-06

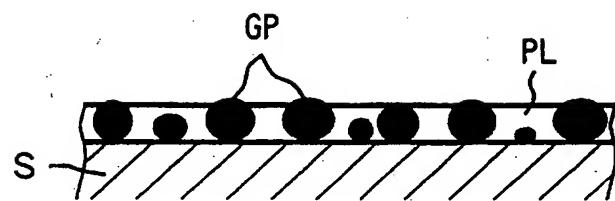


图 4A

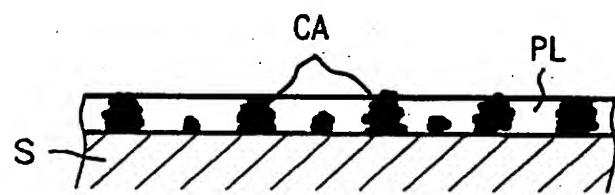


图 4B

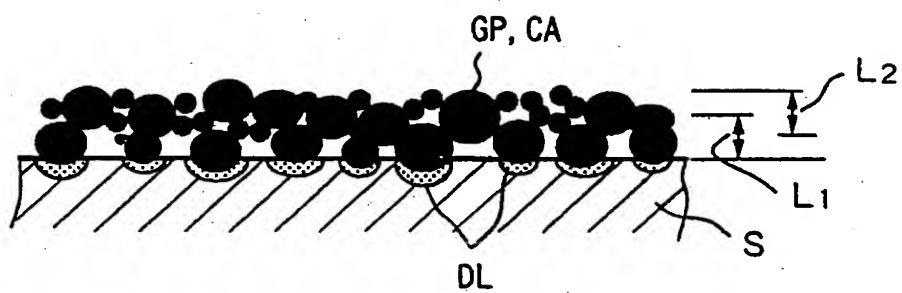


图 5

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT OR DRAWING

BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

GRAY SCALE DOCUMENTS

LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.